

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2000 年 12 月 28 日 (28.12.2000)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 00/78887 A1

(51) 国際特許分類: C09J 163/00, 133/00,  
7/02, H05K 3/32, H01L 23/14, 21/52

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/03908

(22) 国際出願日: 2000 年 6 月 15 日 (15.06.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願平 11/172815 1999 年 6 月 18 日 (18.06.1999) JP  
特願平 11/337878  
1999 年 11 月 29 日 (29.11.1999) JP

靖 (SHIMADA, Yasushi) [JP/JP]; 〒300-2655 茨城県つくば市島名 664 Ibaraki (JP). 稲田 禎一 (INADA, Teiichi) [JP/JP]; 〒305-0035 茨城県つくば市松代 3-4-1 日立化成松代ハウス B-108 Ibaraki (JP). 栗谷 弘之 (KURIYA, Hiroyuki) [JP/JP]; 〒308-0000 茨城県下館市幸町 3-28-12 Ibaraki (JP). 山本和徳 (YAMAMOTO, Kazunori) [JP/JP]; 〒300-3261 茨城県つくば市花畑 1-3-14 Ibaraki (JP). 神代 恭 (KUMASHIRO, Yasushi) [JP/JP]; 〒308-0854 茨城県下館市女方 240 紫水寮 Ibaraki (JP). 住谷 圭二 (SUMIYA, Keiji) [JP/JP]; 〒312-0063 茨城県ひたちなか市田彦 1313-2 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 穂高 哲夫 (HOTAKA, Tetsuo); 〒104-0045 東京都中央区築地 4-6-3-402 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): KR, US.

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立化成工業株式会社 (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒163-0449 東京都新宿区西新宿二丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 田中 裕子 (TANAKA, Yuko) [JP/JP]; 〒304-0031 茨城県下妻市高道祖 2637-1 サンヒル 6 102 号室 Ibaraki (JP). 島田

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ADHESIVE, ADHESIVE MEMBER, CIRCUIT SUBSTRATE FOR SEMICONDUCTOR MOUNTING HAVING ADHESIVE MEMBER, AND SEMICONDUCTOR DEVICE CONTAINING THE SAME

(54) 発明の名称: 接着剤、接着部材、接着部材を備えた半導体搭載用配線基板及びこれを用いた半導体装置

(57) Abstract: An adhesive which comprises (1) 100 parts by weight of an epoxy resin and a hardener therefor, (2) 75 to 300 parts by weight of an epoxidized acrylic copolymer having a glycidyl (meth)acrylate unit content of 0.5 to 6 wt.%, a glass transition temperature of 9-10°C or higher, and a weight-average molecular weight of 100,000 or higher, and (3) 0.1 to 20 parts by weight of a latent curing accelerator; an adhesive member having a layer of the adhesive; and a circuit substrate for semiconductor mounting thereon which has the adhesive member.

(57) 要約:

(1) エポキシ樹脂及びその硬化剤 100 重量部、(2) グリシジル (メタ) アクリレート 0.5~6 重量%を含むガラス転移温度が-10℃以上でかつ重量平均分子量が10万以上であるエポキシ基含有アクリル共重合体 75~300 重量部、並びに (3) 潜在性硬化促進剤 0.1~20 重量部を含有する接着剤; この接着剤の層を有する接着部材; この接着部材を備えた半導体搭載用配線基板; 並びに、これを用いた半導体装置。

WO 00/78887 A1

## 明細書

接着剤、接着部材、接着部材を備えた半導体搭載用配線基板及びこれを用いた半導体装置

5

## 技術分野

本発明は、接着剤、接着部材、接着部材を備えた半導体搭載用配線基板及びこの接着部材を用いて半導体チップと配線基板とを接着させた半導体装置に関する。

## 10 背景技術

近年、電子機器の発達に伴い電子部品の搭載密度が高くなり、チップスケールパッケージやチップサイズパッケージ（以下CSPと呼ぶ）と呼ばれるような半導体チップサイズとほぼ同等なサイズを有する半導体パッケージや半導体のベアチップ実装など新しい形式の実装方法が採用され始めている。

- 15 半導体素子をはじめとする各種電子部品を搭載した実装基板として最も重要な特性の一つとして信頼性がある。その中でも、熱疲労に対する接続信頼性は実装基板を用いた機器の信頼性に直接関係するため非常に重要な項目である。

この接続信頼性を低下させる原因として、熱膨張係数の異なる各種材料を用いていることから生じる熱応力が挙げられる。これは、半導体チップの熱膨張係数が約4 ppm/℃と小さいのに対し、電子部品を実装する配線板の熱膨張係数が15 ppm/℃以上と大きいことから熱衝撃に対して熱ひずみが発生し、その熱ひずみによって熱応力が発生するものである。

従来のQFPやSOP等のリードフレームを有する半導体パッケージを実装した基板では、リードフレームの変形により熱応力を吸収し信頼性を保っていた。

- 25 しかし、ベアチップ実装では、はんだボールを用いて半導体チップの電極と配線板の配線パッドを接続する方式やバンプと称する小突起を作製して導電ペーストで接続する方式をとっており、熱応力がこの接続部に集中して接続信頼性を低下させていた。この熱応力を分散させるためにアンダーフィルと呼ばれる樹脂をチップと配線板の間に注入させることが有効であることがわかっているが、実装

## 2

工程を増やし、コストアップを招いていた。また、従来のワイヤボンディングを用いて半導体チップの電極と配線板の配線パッドを接続する方式もあるが、ワイヤを保護するために封止材樹脂を被覆せねばならずやはり実装工程を増やしていた。

- 5      C S Pは他の電子部品と一括して実装できるために、日刊工業新聞社発行表面実装技術1997-3号記事「実用化に入ったC S P（ファインピッチB G A）のゆくえ」中の5ページ表1に示されたような各種構造が提案されている。その中でも、インターポーザと呼ばれる配線基板にテープやキャリア基板を用いた方式の実用化が進んでいる。これは、前述表の中で、テセラ社やT I 社などが開発
- 10    している方式を含むものである。これらはインターポーザと呼ばれる配線基板を介するために、信学技報C P M 9 6 - 1 2 1, I C D 9 6 - 1 6 0（1996-12）「テープB G AタイプC S Pの開発」やシャープ技報第66号（1996-12）「チップサイズパッケージ（C h i p   S i z e   P a c k a g e）開発」に発表されているように優れた接続信頼性を示している。

- 15    これらのC S Pの半導体チップとインターポーザと呼ばれる配線基板との間には、それぞれの熱膨張率差から生じる熱応力を低減するような接着部材が使われる。このような接着部材には耐湿性や高温耐久性が要求され、さらに、製造工程管理のしやすさから、フィルムタイプの接着部材が求められている。

- 20    フィルムタイプの接着剤は、フレキシブルプリント配線板等で用いられており、アクリロニトリルブタジエンゴムを主成分とする系が多く用いられている。

- 25    プリント配線板関連材料として耐湿性を向上させたものとしては、特開昭60-243180号公報に示されるアクリル系樹脂、エポキシ樹脂、ポリイソシアネート及び無機フィラーを含む接着剤があり、また特開昭61-138680号公報に示されるアクリル系樹脂、エポキシ樹脂、分子中にウレタン結合を有する両末端が第1級アミン化合物及び無機フィラーを含む接着剤がある。

上記の接着部材には、熱応力の緩和の作用、耐熱性や耐湿性を有することが必要である。それに加え、製造プロセスの上からは、半導体チップに設けられた電気信号を出力するための電極部分に接着剤が流出してこないことが必要であり、かつ、配線基板に設けられた回路との間に空隙を残してはならない。電極部分に

接着剤が流出すると電極の接続不良が発生し、回路と接着剤との間に空隙があると耐熱性、耐湿性の低下が起こりやすい。このため、接着剤のフロー量をコントロールすることが重要である。また、熱硬化性樹脂を含むフィルム状接着剤は、経時変化によるフロー量や接着強度の低下が起こりやすい。そのため、接着部材  
5 には、その可使用期間を通したフロー量や接着強度のコントロールが必要となっている。

熱硬化性樹脂を含むフィルム状接着剤は、保管中に少しずつ硬化が進行する。また、半導体チップをインターポーザと呼ばれる配線基板へ実装する行程及びパッケージ組立て等、パッケージが完成するまでの数々の行程を経るうちに接着剤  
10 の硬化が進行する。接着剤の取扱い性の向上や半導体チップの接続信頼性を高めるために、接着剤の可使用期間はできるだけ長い方がよい。すなわち、可使用期間が長いということは経時変化によるフロー量や接着強度の低下が少ないということであり、フロー量や接着強度のコントロールが容易になる。

従来のフィルム状接着剤では、接着剤組成中の硬化促進剤添加量を低減すれば  
15 可使用期間を長くできたが、その場合には接着剤硬化時の硬化速度が遅く発泡が生じるという問題点があった。発泡することなく可使用期間を長くでき、かつ、低弾性、耐熱性、耐湿性等を満足することができる接着剤が求められていた。

また、半導体パッケージや配線に使用する接着剤は、耐熱性を向上させるため、エポキシ樹脂などの熱硬化性を有する高分子量成分を含んでいる場合が多い。し  
20 かし熱硬化性を有する高分子量成分は硬化に高温と長時間を要するという欠点を抱えていた。この欠点を解消するために、従来から熱硬化性樹脂に加えて硬化促進剤を配合する手法が用いられてきた。しかし、硬化促進剤を配合することによって硬化性は大幅に改善されるが、室温においても反応が進行することから、室温で保存した場合に接着剤の流動性が変化し、製品として使用できなくなること  
25 があるという新たな問題が生じていた。この新たな問題の対策として、室温で不活性な潜在性硬化促進剤を用いることが検討された。例えば、特開平 9-302313 号公報では、接着剤組成物中のエポキシ樹脂の硬化促進剤として、潜在性の高いイミダゾールを使用している。しかし、潜在性硬化剤によって保存安定性は改善されるものの、接着フィルムの製造工程においては、接着剤組成物を熱処

## 4

理してBステージまで硬化させる工程があるため、反応が一部進行した潜在性硬化剤が室温においても活性を有するため、反応が徐々に進行して、保存安定性が低下していることがわかった。このことから、さらなる保存安定性の向上が求められていた。

5

## 発明の開示

本発明は、ガラスエポキシ基板やフレキシブル基板等のインターポーザと呼ばれる配線基板に熱膨張係数の差が大きい半導体チップを実装する場合に必要な低弾性、耐熱性、耐湿性を損なうことなく、25℃における可使期間3ヶ月以上を  
10 確保することができる接着剤、接着部材、この接着部材を備えた半導体搭載用配線基板、及びこの接着部材を用いて半導体チップと配線基板を接着させた半導体装置の提供を目的とする。

また、接着フィルムの製造工程では、塗工乾燥炉で高温で熱処理する工程において硬化促進剤の反応が一部進行するため、室温で保管している際にも硬化促進  
15 剤が分解するなどして活性を有しており、それが潜在性硬化促進剤であっても同様である。特に、フィルム中の架橋性高分子成分の反応性が高いため、それらが架橋し、流動性が大きく変化し、保存安定性が低下することが解った。本発明は、この問題に鑑み、特に保存安定性に優れた接着フィルムの製造に用いる接着剤を提供することを目的とする。

20 即ち、本発明は、次のものに関する。

1. (1) エポキシ樹脂及びその硬化剤100重量部、(2) 共重成分としてグリシジル(メタ)アクリレート0.5～6重量%を含むT<sub>g</sub>(ガラス転移温度)が-10℃以上でかつ重量平均分子量が10万以上であるエポキシ基含有アクリル共重合体75～300重量部、(3) 潜在性硬化促進剤0.1～20重量  
25 部を含有する接着剤(以下、接着剤Aと呼ぶことがある)。

2. (1) エポキシ樹脂及びその硬化剤100重量部、(2) エポキシ樹脂と相溶性がありかつ重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂5～40重量部、(3) グリシジル(メタ)アクリレート0.5～6重量%を含むT<sub>g</sub>(ガラス転移温度)が-10℃以上でかつ重量平均分子量が10万以上であるエポキシ基含有

## 5

アクリル共重合体 75～300重量部、(4) 潜在性硬化促進剤 0.1～20重量部を含有する接着剤。

3. 潜在性硬化促進剤がアダクト型である項1又は項2のいずれかに記載の接着剤。
- 5 4. 潜在性硬化促進剤がアミンアダクトである項3に記載の接着剤。
5. 潜在性硬化促進剤がアミン-エポキシアダクトである項4に記載の接着剤。
6. 無機フィラーを、接着剤樹脂分100体積部に対して1～20体積部含む項1乃至項5のいずれかに記載の接着剤。
7. 無機フィラーがアルミナ、シリカ、水酸化アルミ、アンチモン酸化物のいずれかである項6に記載の接着剤。
- 10 8. 接着剤を、DSCを用いて測定した場合の全硬化発熱量の10～40%の発熱を終えた状態にした項1乃至項7のいずれかに記載の接着剤。
9. 残存溶媒量が5重量%以下である項1乃至項8のいずれかに記載の接着剤。
10. 動的粘弾性測定装置を用いて測定した場合の接着剤硬化物の貯蔵弾性率が25℃で20～2000MPaであり、260℃で3～50MPaである項1
- 15 乃至項9のいずれかに記載の接着剤。
11. Bステージ状態で相分離する2種類の樹脂及び硬化剤、硬化促進剤を必須成分とする接着剤組成物であり、Bステージ状態において硬化促進剤が分散相に相溶性を有し、連続相とは相分離することを特徴とする接着剤（以下、接着剤
- 20 Bと呼ぶことがある）。
12. Bステージ状態で、分散相がエポキシ樹脂及び硬化剤を主成分とする相となり、連続相が重量平均分子量10万以上の高分子量成分を主成分とする相となることを特徴とする項11記載の接着剤。
13. 重量平均分子量10万以上の高分子量成分がグリシジルメタクリレート
- 25 又はグリシジルアクリレート2～6重量%を含むエポキシ基含有アクリル共重合体であることを特徴とする項12記載の接着剤。
14. 硬化促進剤がアミン-エポキシアダクト化合物である項11乃至項13のいずれかに記載の接着剤。
15. 項1乃至項14のいずれかに記載の接着剤の層をキャリアフィルム上に

## 6

形成して得られるフィルム状の接着部材。

16. 項1乃至項14のいずれかに記載の接着剤の層をコア材の両面に形成して得られる接着部材。

17. コア材が耐熱性熱可塑フィルムである項16に記載の接着部材。

5 18. 耐熱性熱可塑フィルム材料の軟化点が260℃以上である項17に記載の接着部材。

19. コア材または耐熱性熱可塑フィルムが多孔質フィルムである項17又は項18のいずれかに記載の接着部材。

20. 耐熱性熱可塑フィルムが液晶ポリマである項17乃至項19のいずれかに記載の接着部材。

21. 耐熱性熱可塑フィルムがポリアミドイミド、ポリイミド、ポリエーテルイミドまたはポリエーテルスルホンのいずれかである項17乃至項20のいずれかに記載の接着部材。

22. 耐熱性熱可塑フィルムがポリテトラフルオロエチレン、エチレンテトラフルオロエチレンコポリマー、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレンコポリマー、テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテルコポリマーのいずれかである項17乃至項20のいずれかに記載の接着部材。

23. 配線基板の半導体チップ搭載面に項15乃至項22のいずれかに記載の接着部材を備えた半導体搭載用配線基板。

20 24. 半導体チップと配線基板を項15乃至項22のいずれかに記載の接着部材を用いて接着させた半導体装置。

25. 半導体チップの面積が、配線基板の面積の70%以上である半導体チップと配線基板を項15乃至項22のいずれかに記載の接着部材を用いて接着させた半導体装置。

25

#### 図面の簡単な説明

図1(a)は、本発明による接着剤単層からなるフィルム状の接着部材を示す断面図、(b)は本発明によるコア材の両面に接着剤の層を備えた接着部材を示す断面図である。

## 7

図2(a)は、本発明による接着剤単層からなるフィルム状の接着部材を用いた半導体搭載用配線基板を示す断面図、図2(b)は本発明によるコア材の両面に接着剤の層を備えた接着部材を用いた半導体搭載用配線基板を示す断面図である。

- 5 図3(a)は、本発明による接着剤単層からなるフィルム状の接着部材を用いて半導体チップと配線基板を接着させ、半導体チップのパッドと基板上の配線とをボンディングワイヤで接続した半導体装置の断面図、図3(b)は、本発明によるコア材の両面に接着剤の層を備えた接着部材を用いて半導体チップと配線基板を接着させ、半導体チップのパッドと基板上の配線とをボンディングワイヤで
- 10 接続した半導体装置の断面図、図3(c)は、本発明による接着剤単層からなるフィルム状の接着部材を用いて半導体チップと配線基板を接着させ、半導体チップのパッドに基板のインナーリードをボンディングした半導体装置の断面図、図3(d)は、本発明によるコア材の両面に接着剤の層を備えた接着部材を用いて半導体チップと配線基板を接着させ、半導体チップのパッドに基板のインナーリ
- 15 ードをボンディングした半導体装置の断面図である。

## 符号の説明

1. 接着剤、 2. コア材（耐熱性熱可塑フィルム）、 3. 配線、  
4. 配線基板、 5. 半導体チップ、 6. ボンディングワイヤ  
6'. インナーリード、 7. 封止材、 8. 外部接続端子

20

## 発明を実施するための最良の形態

- 本発明の接着剤Aにおいて使用するエポキシ樹脂は、硬化して接着作用を呈するものであればよく、二官能以上で、好ましくは分子量または重量平均分子量が5000未満（例えば、300以上5000未満）、より好ましくは3000未
- 25 満のエポキシ樹脂が使用できる。二官能エポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型またはビスフェノールF型エポキシ樹脂等が例示される。ビスフェノールA型またはビスフェノールF型液状エポキシ樹脂は、油化シェルエポキシ株式会社から、エピコート807、エピコート827、エピコート828という商品名で市販されている。また、ダウケミカル日本株式会社からは、D. E. R. 330、



## 8

D. E. R. 331、D. E. R. 361という商品名で市販されている。さらに、東都化成株式会社から、YD8125、YDF8170という商品名で市販されている。

エポキシ樹脂としては、高Tg化を目的に多官能エポキシ樹脂を加えてもよく、  
5 多官能エポキシ樹脂としては、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂等が例示される。フェノールノボラック型エポキシ樹脂は、日本化薬株式会社から、EPPN-201という商品名で市販されている。クレゾールノボラック型エポキシ樹脂は、住友化学工業株式会社から、ESC  
CN-190、ESC  
CN-195という商品名で市販されている。また、前記日  
10 本化薬株式会社から、EOCN1012、EOCN1025、EOCN1027  
という商品名で市販されている。さらに、前記東都化成株式会社から、YDCN  
701、YDCN702、YDCN703、YDCN704という商品名で市販  
されている。

エポキシ樹脂の硬化剤は、エポキシ樹脂の硬化剤として通常用いられているも  
15 のを使用でき、アミン、ポリアミド、酸無水物、ポリスルフィッド、三弗化硼素  
及びフェノール性水酸基を1分子中に2個以上有する化合物であるビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS等が挙げられる。特に吸湿時の耐電  
食性に優れるためフェノール樹脂であるフェノールノボラック樹脂、ビスフェノ  
ールノボラック樹脂またはクレゾールノボラック樹脂等を用いるのが好ましい。

20 このような好ましいとした硬化剤は、フェノールノボラック樹脂は大日本イン  
キ化学工業株式会社から、バーカムTD2090、バーカムTD2131、プラ  
イオーフェンLF2882という商品名で、ビスフェノールノボラック樹脂は大  
日本インキ化学工業株式会社から、フェノライトLF2882、フェノライトL  
F2822、フェノライトTD-2090、フェノライトTD-2149、フェ  
25 ノライトVH4150、フェノライトVH4170という商品名で市販されてい  
る。フェノールノボラック樹脂、ビスフェノールノボラック樹脂またはクレゾ  
ールノボラック樹脂としては、例えば、重量平均分子量が500から2000の  
ものが好ましく用いられ、700から1400のものがより好ましい。

硬化剤は、エポキシ樹脂のエポキシ基1当量に対して、硬化剤のエポキシ基と

## 9

の反応基が0.6～1.4当量使用することが好ましく、0.8～1.2当量使用することが好ましい。硬化剤が少なすぎたり多すぎると耐熱性が低下する傾向がある。

- エポキシ樹脂と相溶性がありかつ重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂としては、フェノキシ樹脂、高分子量エポキシ樹脂、超高分子量エポキシ樹脂、極性の大きい官能基含有ゴム、極性の大きい官能基含有反応性ゴムなどが挙げられる。Bステージにおける接着剤のタック性の低減や硬化時の可撓性を向上させるため重量平均分子量が3万以上とされる。エポキシ樹脂と相溶性がありかつ重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂は、重量平均分子量が50万以下が好ましく、3万～10万であることがさらに好ましい。この樹脂の分子量が大きすぎると樹脂流動性が低下する。前記極性の大きい官能基含有反応性ゴムは、アクリルゴムにカルボキシル基のような極性が大きい官能基を付加したゴムが挙げられる。ここで、エポキシ樹脂と相溶性があるとは、硬化後にエポキシ樹脂と分離して二つ以上の相に分かれることなく、均質混和物を形成する性質を言う。エポキシ樹脂と相溶性がありかつ重量平均分子量が3万以上の高分子量樹脂の配合量は、エポキシ樹脂と硬化剤の合計量100重量部に対して、エポキシ樹脂を主成分とする相（以下エポキシ樹脂相という）の可撓性の不足、タック性の低減やクラック等による絶縁性の低下を防止するため5重量部以上、エポキシ樹脂相のT<sub>g</sub>の低下を防止するため40重量部以下とされ、好ましくは10～20重量部とされる。
- フェノキシ樹脂は、東都化成株式会社から、フェノトートYP-40、フェノトートYP-50という商品名で市販されている。また、フェノキシアソシエート社から、PKHC、PKHH、PKHJという商品名で市販されている。高分子量エポキシ樹脂は、分子量が3万～8万の高分子量エポキシ樹脂、さらには、分子量が8万を超える超高分子量エポキシ樹脂（特公平7-59617号、特公平7-59618号、特公平7-59619号、特公平7-59620号、特公平7-64911号、特公平7-68327号公報参照）があり、何れも日立化成工業株式会社で製造している。極性の大きい官能基含有反応性ゴムとして、カルボキシル基含有アクリルゴムは、帝国化学産業株式会社から、HTR-860Pという商品名で市販されている。

## 10

グリシジル（メタ）アクリレート 0.5～6 重量%を含む T<sub>g</sub> が -10℃ 以上でかつ重量平均分子量が 10 万以上であるエポキシ基含有アクリル共重合体は、帝国化学産業株式会社から市販されている商品名 HTR-860P-3 を使用することができる。官能基モノマーが、カルボン酸タイプのアクリル酸や、水酸基

5 タイプのヒドロキシメチル（メタ）アクリレートを用いると、架橋反応が進行しやすく、ワニス状態でのゲル化、B ステージ状態での硬化度の上昇による接着力の低下等の問題があるため好ましくない。また、官能基モノマーとして用いるグリシジル（メタ）アクリレートの量は、0.5～6 重量%の共重合体比とする。耐熱性を確保するため、0.5 重量%以上とし、ゴム添加量を低減し、ワニス固

10 形分比を上げるために 6 重量%以下とされる。6 重量%を超えた場合には、接着剤硬化物の弾性率を低減させるために多量のエポキシ基含有アクリル共重合体が必要となる。エポキシ基含有アクリル共重合体は分子量が高いため、重量比率が高くなると接着剤ワニスの粘度が上昇する。このワニス粘度が高いと、フィルム化が困難になるため、粘度低下を目的に適量の溶剤で希釈する。この場合、接着

15 剤ワニスの固形分が低下し、接着剤ワニス作製量が増大し、製造の効率が低下する問題が発生する。グリシジル（メタ）アクリレート以外の残部は、メチルアクリレート、メチルメタクリレートなどの炭素数 1～8 のアルキル基をもつアルキルアクリレート又はアルキルメタクリレート、およびこれらとスチレンやアクリロニトリルなどとの混合物を用いることができる。これらの混合比率は、共重合

20 体の T<sub>g</sub> を考慮して決定する。T<sub>g</sub> が -10℃ 未満であると B ステージ状態での接着フィルムのタック性が大きくなり取扱性が悪化するので、-10℃ 以上とされる。この T<sub>g</sub> は 40℃ 以下であることが好ましく、さらに、-10℃～20℃ が好ましい。この T<sub>g</sub> が高すぎるとフィルムの取り扱い時室温で破断しやすくなる。重合方法はパール重合、溶液重合等が挙げられ、これらにより得ることがで

25 きる。例えば、(a) アクリロニトリル 18～40 重量%、(b) グリシジル（メタ）アクリレート 0.5～6 重量% 及び (c) エチルアクリレート、エチルメタクリレート、ブチルアクリレートまたはブチルメタクリレート 54～80 重量% を共重合させて得られる共重合体为好適である。

エポキシ基含有アクリル共重合体の重量平均分子量は、10 万以上とされ、特

## 11

に80万以上であることが好ましい。この範囲では、シート状、フィルム状での強度や可撓性の低下やタック性の増大が少ないからである。また、分子量が大きくなるにつれフロー性が小さく配線の回路充填性が低下してくるので、エポキシ基含有アクリル共重合体の重量平均分子量は、200万以下であることが好ましい。

上記エポキシ基含有アクリル共重合体配合量は、エポキシ樹脂と硬化剤の合計量100重量部に対して、弾性率低減や成形時のフロー性抑制のため75重量部以上とされ、エポキシ基含有アクリル共重合体の配合量が増えると、ゴム成分の相が多くなり、エポキシ樹脂相が少なくなるため、高温での取扱性の低下が起こるため、300重量部以下とすることが好ましく、さらに、100～250重量部とすることが好ましい。

潜在性硬化促進剤とは、接着剤の硬化温度での反応速度を維持したまま室温における反応速度を極めて低くできる硬化促進剤のことであり、室温ではエポキシ樹脂に不溶の固体の硬化促進剤で、加熱することで可溶化し促進剤として機能するものである。本発明に用いられる潜在性硬化促進剤としては、従来から提案されている潜在性硬化剤を用いることができ、その代表例としてはジシアンジミド、アジピン酸ジヒドラジド等のジヒドラジド化合物、グアナミン酸、メラミン酸、エポキシ化合物とイミダゾールの化合物との付加化合物、エポキシ化合物とジアルキルアミン類との付加化合物、アミンと尿素、チオ尿素又はこれらの誘導体との付加化合物（アミン－ウレイドアダクト系潜在性硬化促進剤）、アミンとイソシアネートとの付加化合物（アミン－ウレタンアダクト系潜在性硬化促進剤）が挙げられるが、これらに限定されるものではない。室温での活性を低減できる点でアダクト型の構造をとっているものが好ましい。アダクト型の構造とは、触媒活性を有する化合物と種々の化合物を反応させて得られる付加化合物のことであり、触媒活性を有する化合物がイミダゾール化合物や1, 2, 3級アミノ基を有する化合物などのアミン類であればアミンアダクト型という。さらに、アダクトしている化合物の種類によりアミン－エポキシアダクト系、アミン－ウレイドアダクト系、アミン－ウレタンアダクト系等がある。硬化時に発泡せず、かつ低弾性を有し、耐熱性、耐湿性が良好な接着剤硬化物を得られる点でアミン－エポキ

## 12

シアダクト系が最も好ましい。さらにエポキシ化合物が長鎖であるものが潜在性がより高く優れている。

本発明に用いられるアミン-エポキシアダクト系潜在性硬化促進剤とは、室温ではエポキシ樹脂に不溶性の固体で、加熱することで可溶化し促進剤として機能する、アミン類とエポキシ化合物を反応させて得られる付加物であり、これらの付加物の表面をイソシアネート化合物や酸性化合物で処理したもの等も含まれる。

アミン-エポキシアダクト系潜在性硬化促進剤の製造原料として用いられるエポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノールA、ビスフェノールF、カテコール、レゾルシノール等の多価フェノール、またはグリセリンやポリエチレングリコール等の多価アルコールとエピクロルヒドリンを反応させて得られるポリグリシジルエーテル、あるいはp-ヒドロキシ安息香酸、β-ヒドロキシナフトエ酸等のヒドロキシカルボン酸とエピクロルヒドリンを反応させて得られるグリシジルエーテルエステル、あるいはフタル酸、テレフタル酸等のポリカルボン酸とエピクロルヒドリンを反応させて得られるポリグリシジルエステル、あるいは4, 4'-ジアミノジフェニルメタンやm-アミノフェノールなどとエピクロルヒドリンを反応させて得られるグリシジリアミン化合物、さらにはエポキシ化フェノールノボラック樹脂、エポキシ化クレゾールノボラック樹脂、エポキシ化ポリオレフィン等の多官能性エポキシ化合物や、ブチルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテル、グリシジルメタクリレート等の単官能性エポキシ化合物等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

アミン-エポキシアダクト系潜在性硬化促進剤の製造原料として用いられるアミン類は、エポキシ基と付加反応しうる活性水素を分子内に1個以上有し、かつ1級アミノ基、2級アミノ基、3級アミノ基の中から選ばれた置換基を分子内に少なくとも1個以上有するものであれば良い。このようなアミン類としては、例えば、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、n-プロピルアミン、2-ヒドロキシエチルアミノプロピルアミン、シクロヘキシルアミン、4, 4'-ジアミノジシクロヘキシルメタン等の脂肪族アミン類、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン、2-メチルアニリン等の芳香族アミン類、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダ

## 13

ゾリン、2，4－ジメチルイミダゾリン、ピペリジン、ピペラジン等の窒素含有複素環化合物等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。これらの化合物の中でも特に3級アミノ基を有する化合物は潜在性が極めて高い硬化促進剤を与える原料であり、そのような化合物の例を以下に示すがこれらに限定されるものではない。例えば、ジメチルアミノプロピルアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、ジ－n－プロピルアミノプロピルアミン、ジブチルアミノプロピルアミン、ジメチルアミノエチルアミン、ジエチルアミノエチルアミン、N－メチルピペラジン等のようなアミン化合物や、2－メチルイミダゾール、2－エチルイミダゾール、2－エチル－4－メチルイミダゾール、2－フェニルイミダゾール等のイミダゾール化合物等のような、分子内に3級アミノ基を有する1級もしくは2級アミン類などがある。

アミン－ウレイドアダクト系潜在性硬化促進剤、アミン－ウレタンアダクト系潜在性硬化促進剤の原料となるアミン化合物も同様のものが使用できる。

アミン－ウレタンアダクト系潜在性硬化促進剤の原料となるイソシアネート化合物としては、トリレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ジフェニルスルホンジイソシアネート、トリフェニルメタンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、3－イソシアネートメチル－3，5，5－トリメチルシクロヘキシルイソシアネート、3－イソシアネートエチル－3，5，5－トリメチルシクロヘキシルイソシアネート、3－イソシアネートエチル－3，5，5－トリエチルシクロヘキシルイソシアネート、ジフェニルプロパンジイソシアネート、フェニレンジイソシアネート、シクロヘキシリレンジイソシアネート、3，3’－ジイソシアネートジプロピルエーテル、トリフェニルメタントリイソシアネート、ジフェニルエーテル－4，4’－ジイソシアネート等のポリイソシアネート化合物、これらの二量体又は三量体、これらのポリイソシアネート化合物のトリメチロールプロパン、グリセリン等の多価アルコールとの付加物などがある。

本発明に用いられるアダクト型硬化促進剤の代表的な例を以下に示すがこれらに限定されるものではない。アミン－エポキシアダクト系としては、味の素株式会社からはアミキュアPN－23、アミキュアMY－24、アミキュアMY－D、

## 14

アミキュアMY-H等、エー・シー・アール株式会社からはハードナーX-3615S、ハードナーX-3293S等、旭化成株式会社からはノバキュアHX-3748、ノバキュアHX-3088等、パシフィック アンカー ケミカルからはAncamine 2014AS、Ancamine 2014FG等がそれぞれ上記の商品名で市販されている。また、アミン-ウレイド型アダクト系としては富士化成株式会社からフジキュアFXE-1000、フジキュアFXR-1030という商品名で市販されている。

潜在性硬化促進剤の配合量は、エポキシ樹脂及びその硬化剤の合計100重量部に対して、0.1~20重量部、好ましくは1.0~15重量部であり、0.1重量部未満であると硬化速度が極めて遅くなり良好な接着剤硬化物が得られず、また20重量部を超えると可使期間が短くなるため不適である。

接着剤には、異種材料間の界面結合をよくするために、カップリング剤を配合することもできる。カップリング剤としては、シラン系カップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤が挙げられ、その中でもシランカップリング剤が好ましい。

シランカップリング剤としては、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -ウレイドプロピルトリエトキシシラン、N- $\beta$ -アミノエチル- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

前記したシランカップリング剤は、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシランがNUC A-187、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシランがNUC A-189、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシランがNUC A-1100、 $\gamma$ -ウレイドプロピルトリエトキシシランがNUC A-1160、N- $\beta$ -アミノエチル- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシランがNUC A-1120という商品名で、いずれも日本ユニカー株式会社から市販されている。

カップリング剤の配合量は、添加による効果や耐熱性およびコストから、樹脂100重量部に対し0.1~10重量部を配合するのが好ましい。

さらに、イオン性不純物を吸着して、吸湿時の絶縁信頼性をよくするために、イオン捕捉剤を配合することができる。イオン捕捉剤の配合量は、添加による効

- 果や耐熱性、コストより、エポキシ樹脂及びその硬化剤 100 重量部に対して、1 ~ 10 重量部が好ましい。イオン捕捉剤としては、銅がイオン化して溶け出すのを防止するため銅害防止剤として知られる化合物、例えば、トリアジンチオール化合物、ビスフェノール系還元剤を配合することもできる。ビスフェノール系還元剤としては、2, 2'-メチレンビス-(4-メチル-6-第3-ブチルフェノール)、4, 4'-チオビス-(3-メチル-6-第3-ブチルフェノール)等が挙げられる。また、無機イオン吸着剤を配合することもできる。無機イオン吸着剤としては、ジルコニウム系化合物、アンチモンビスマス系化合物、マグネシウムアルミニウム系化合物等が挙げられる。トリアジンチオール化合物を成分とする銅害防止剤は、三協製薬株式会社から、ジスネットDBという商品名で市販されている。ビスフェノール系還元剤を成分とする銅害防止剤は、吉富製薬株式会社から、ヨシノックスBBという商品名で市販されている。また、無機イオン吸着剤は、東亜合成化学工業株式会社からIXEという商品名で各種市販されている。
- さらに、本発明の接着剤には、接着剤の取扱性の向上、熱伝導性の向上、熔融粘度の調整、チクソトロピック性の付与などを目的として、無機フィラーを配合することが好ましい。無機フィラーとしては、水酸化アルミ（水酸化アルミニウム）、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、アルミナ、窒化アルミニウム、ほう酸アルミウイスカ、窒化ホウ素、結晶性シリカ、非晶性シリカ、アンチモン酸化物などが挙げられる。熱伝導性向上のためには、アルミナ、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、結晶性シリカ、非晶性シリカ等が好ましい。熔融粘度の調整やチクソトロピック性の付与の目的には、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、アルミナ、結晶性シリカ、非晶性シリカ等が好ましい。また、上記に加え耐湿性を向上させるアルミナ、シリカ、水酸化アルミ、アンチモン酸化物が好ましい。

上記無機フィラー配合量は、接着剤樹脂分 100 体積部に対して 1 ~ 20 体積部が好ましい。配合の効果の点から配合量が 1 体積部以上、配合量が多くなると、



## 16

接着剤の貯蔵弾性率の上昇、接着性の低下、ボイド残存による電気特性の低下等の問題を起こすので20体積部以下とするのが好ましい。

更に、本発明者らは、硬化促進剤を不連続に分散する樹脂相に選択的に入れることにより接着剤及び接着フィルムの保存安定性を向上できることを見出した。

- 5 このためには、接着剤Bは、Bステージ状態で相分離する2種類の樹脂、硬化剤、及び、硬化促進剤を必須成分とする接着剤組成物であり、Bステージ状態において硬化促進剤が分散相に相溶性を有し、連続相とは相分離することが必要である。

- 上記の分散相に使用する樹脂としてはエポキシ樹脂、シアネートエステル樹脂、シアネート樹脂、シリコーン樹脂、エポキシ基やカルボキシル基などの官能基を  
10 有するアクリルゴム、エポキシ基やカルボキシル基などの官能基を有するブタジエンゴム、シリコーン変性ポリアミドイミドなどの変性樹脂などが使用できる。  
接着性、耐熱性が高い点でエポキシ樹脂が好ましい。エポキシ樹脂としては、前記に記載したものが使用できる。また、エポキシ樹脂の硬化剤も前記したものが使用できる。これらの配合割合も前記の通りである。

- 15 Bステージ状態で上記樹脂相と相分離する樹脂としては、アクリル酸エステルやメタクリル酸エステル及びアクリロニトリルなどの共重合体であるアクリルゴム、スチレンやアクリロニトリルなどを含むブタジエンゴム、シリコーン樹脂、シリコーン変性ポリアミドイミドなどの変性樹脂が挙げられる。また、重量平均分子量が10万以上の高分子量成分を使用した場合、フィルムとしての取り扱い  
20 性が良好である。さらにまた、グリシジルメタクリレート又はグリシジルアクリレート2～6重量%を含むT<sub>g</sub>が-10℃以上でかつ重量平均分子量が10万以上（特に好ましくは80万以上、また、好ましくは200万以下）であるアクリル系共重合体を用いた場合、接着性、耐熱性が高い点で特に好ましい。

- グリシジルメタクリレート又はグリシジルアクリレート2～6重量%を含むT  
25 gが-10℃以上でかつ重量平均分子量が10万以上（特に好ましくは80万以上）であるアクリル系共重合体としては、接着剤Aについて前記したもののうち、グリシジル（メタ）クリレート共重合成分2～6重量%を含むものが使用できる。

これらの樹脂相を形成する樹脂はBステージ状態で相分離する必要があり、また、一方の樹脂が不連続に分散する分散相を形成し、他方が連続相を形成する必

要がある。なお本発明でいうBステージ状態とはDSCを用いて、硬化発熱量を測定した値が、未硬化状態での組成物の全硬化発熱量の10～40%である状態である。

- 5 Bステージ状態となったときに連続相を形成する樹脂の配合量は、通常、分散相および連続相を形成する樹脂分の20～85重量%とすることが好ましい。

- 硬化促進剤はBステージ状態で島状に不連続に分散する分散相と相溶性を有し、海状の相とは相分離する物質である必要がある。島状の相と同様の極性、分子構造を有し、他方とは大きく異なる極性、分子構造を有するものであることが好ましい。例えば島状に不連続に分散する樹脂相がエポキシ樹脂及び硬化剤を主成分とする相であり、もう一方の相がアクリルゴムの場合には、硬化促進剤はエポキシ化合物とイミダゾール化合物との付加化合物、エポキシ化合物とジアルキルアミン類との付加化合物などが好ましい。さらにエポキシ化合物が長鎖であるものが特に好ましい。特に室温での活性を低減できる点で、前記したアダクト型の構造をとっているものが好ましく、アミン-エポキシ付加化合物、アミン-ウレイド付加化合物、アミン-ウレタン付加化合物等がある。硬化時に発泡せず、かつ低弾性を有し、耐熱性、耐湿性が良好な接着剤硬化物を得られる点でアミン-エポキシ付加化合物が特に好ましい。
- 10  
15

アミン-エポシアダクト系潜在性硬化促進剤、アダクト型硬化促進剤の代表的な例は、前記したとおりのものである。

- 20 硬化促進剤（潜在性硬化促進剤を包含する）の配合量は好ましくは、分散相の樹脂及び硬化剤の合計100重量部に対して0.1～20重量部、より好ましくは1.0～15重量部である。0.1重量部未満であると硬化速度が遅くなる傾向にあり、また20重量部を超えると可使期間が短くなる傾向がある。

- 硬化促進剤としては上記したアダクト型の潜在性硬化促進剤が好ましく、その他の硬化促進剤として各種イミダゾール類などを適宜併用することが好ましく、その量は、所望の保存安定性が得られること考慮して決定することが好ましい。イミダゾールとしては、2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾリウムトリメリテート等が挙げられる。イミダゾール類は、
- 25

## 18

四国化成工業株式会社から、2E4MZ、2PZ-CN、2PZ-CSNという商品名で市販されている。

このほかに、流動性の調節、耐湿性の向上を目的に、フィラーを添加しても良い。このようなフィラーとしては、シリカ、三酸化ニアンチモン等がある。

- 5      接着剤には、異種材料間の界面結合をよくするために、カップリング剤を配合することもできる。さらに、イオン性不純物を付着して、吸湿時の絶縁信頼性をよくするために、イオン捕捉剤を配合することができる。

カップリング剤の使用量は、分散相と連続相のそれぞれを形成する樹脂成分及び硬化剤成分の総量に対して、0.1～10重量%が好ましい。

- 10      イオン捕捉剤の使用量は、分散相と連続相のそれぞれを形成する樹脂成分及び硬化剤成分の総量に対して、1～10重量%が好ましい。

- 硬化促進剤を不連続に分散する樹脂相に選択的に入れることによる作用については明確ではないが、以下のように推測される。島状の分散相に大部分の硬化促進剤が含まれており、連続相に存在する硬化促進剤は非常に少ない。分散相において保管中に硬化が進行しても流動性に及ぼす影響は小さく、一方、硬化温度に  
15      においては、分散相から開始された反応によってできた活性基が連続相と反応することで、連続相の硬化も進行すると考えられる。

- 本発明におけるフィルム状の接着部材は、接着剤の各成分を溶剤に溶解ないし分散してワニスとし、キャリアフィルム上に塗布、加熱し、溶剤を除去すること  
20      により、接着剤層をキャリアフィルム上に形成して得られる。加熱の温度は、通常、100～180℃が好ましく、130～160℃がより好ましく、加熱時間は、通常、3～15分間が好ましく、4～10分間がより好ましい。この加熱による溶剤除去後の接着剤は、DSC（示差走査熱分析）を用いて測定した全硬化発熱量の10～40%の発熱を終えた状態とすることが好ましい。また、フィルム状となった接着剤中の残存溶媒量は、5重量%以下であることが好ましい。  
25

キャリアフィルムとしては、ポリテトラフルオロエチレンフィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、離型処理したポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリエチレンフィルム、ポリプロピレンフィルム、ポリメチルペンテンフィルム、ポリアミドフィルムなどのプラスチックフィルムが使用できる。キャリア

## 19

フィルムは、使用時に剥離して接着フィルムのみを使用することもできるし、キャリアフィルムとともに使用し、後で除去することもできる。

本発明で用いるキャリアフィルムの例として、ポリイミドフィルムは、東レ・デュポン株式会社からカプトンという商品名で、鐘淵化学工業株式会社からアピカルという商品名で市販されている。ポリエチレンテレフタレートフィルムは、  
5 東レ・デュポン株式会社からルミラーという商品名で、帝人株式会社からビューレックスという商品名で市販されている。

ワニス化の溶剤は、比較的低沸点の、メチルエチルケトン、アセトン、メチルイソブチルケトン、2-エトキシエタノール、トルエン、ブチルセルソルブ、メ  
10 タノール、エタノール、2-メトキシエタノールなどを用いるのが好ましい。また、塗膜性を向上するなどの目的で、高沸点溶剤を加えても良い。高沸点溶剤としては、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミド、メチルピロリドン、シクロヘキサノンなどが挙げられる。

ワニスの製造は、無機フィラーの分散を考慮した場合には、らいかい機、3本  
15 ロール及びビーズミル等により、またこれらを組み合わせて行なうことができる。フィラーと低分子量物をあらかじめ混合した後、高分子量物を配合することにより、混合に要する時間を短縮することも可能となる。また、ワニスとした後、真空脱気によりワニス中の気泡を除去することが好ましい。

フィルム状接着剤のみからなる接着部材の厚みは、25～250  $\mu\text{m}$ が好まし  
20 いが、これに限定されるものではない。25  $\mu\text{m}$ よりも薄いと応力緩和効果に乏しく、厚いと経済的でなくなる。

また、複数の接着フィルムを貼合わせることにより、所望の膜厚の接着部材を得ることもできる。この場合には、接着フィルム同士の剥離が発生しないような貼合わせ条件が必要である。

25 本発明の接着部材は、コア材の両面に接着剤の層を形成したものであってもよい。コア材の厚みは5～200  $\mu\text{m}$ の範囲内であることが好ましいが、これに限定されるものではない。コア材の両面に形成される接着剤の層の厚みは、各々10～200  $\mu\text{m}$ の範囲が好ましい。これより薄いと接着性や応力緩和効果に乏しく、厚いと経済的でなくなるが、これに限定されるものではない。

## 20

本発明でコア材に用いられるフィルムとしては、耐熱性ポリマまたは液晶ポリマ、フッ素系ポリマなどを用いた耐熱性熱可塑フィルムが好ましく、ポリアミドイミド、ポリイミド、ポリエーテルイミド、ポリエーテルスルホン、全芳香族ポリエステル、ポリテトラフルオロエチレン、エチレンテトラフルオロエチレンコポリマー、テトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレンコポリマー、テトラフルオロエチレンーパーフルオロアルキルビニルエーテルコポリマーなどが好適に用いられる。また、コア材は、接着部材の弾性率低減のために多孔質フィルムを用いることもできる。コア材としては、軟化点温度が260℃以上のものを用いることが好ましい。軟化点温度が260℃未満の熱可塑性フィルムをコア材に用いた場合は、はんだリフロー時などの高温時に接着剤との剥離を起こす場合がある。

ポリイミドフィルムは、宇部興産株式会社からユーピレックスという商品名で、東レ・デュポン株式会社からカプトンという商品名で、鐘淵化学工業株式会社からアピカルという商品名で市販されている。ポリテトラフルオロエチレンフィルムは、三井・デュポンフロロケミカル株式会社からテフロンという商品名で、ダイキン工業株式会社からポリフロンという商品名で市販されている。エチレンテトラフルオロエチレンコポリマーフィルムは、旭硝子株式会社からアフロンCOPという商品名で、ダイキン工業株式会社からネオフロンETFEという商品名で市販されている。テトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレンコポリマーフィルムは、三井・デュポンフロロケミカル株式会社からテフロンFEPという商品名で、ダイキン工業株式会社からネオフロンFEPという商品名で市販されている。テトラフルオロエチレンーパーフルオロアルキルビニルエーテルコポリマーフィルムは、三井・デュポンフロロケミカル株式会社からテフロンPFAという商品名で、ダイキン工業株式会社からネオフロンPFAという商品名で市販されている。液晶ポリマフィルムは、株式会社クラレからベクトラという商品名で市販されている。さらに、多孔質ポリテトラフルオロエチレンフィルムは、住友電気工業株式会社からポアフロンという商品名で、ジャパングアテックス株式会社からゴアテックスという商品名で市販されている。

コア材の両面に形成される接着剤の層は、接着剤の各成分を溶剤に溶解ないし

## 21

分散してワニスとし、このワニスをコア材となる耐熱性熱可塑フィルム上に塗布、加熱し溶剤を除去することにより接着剤層を耐熱性熱可塑フィルム上に形成することができる。この工程を耐熱性熱可塑フィルムの両面について行うことにより、コア材の両面に接着剤の層を形成した接着部材を作製することができる。この場合には、両面の接着剤層同士がブロッキングしないようにカバーフィルムで表面を保護することが望ましい。しかし、ブロッキングが起こらない場合には、経済的な理由からカバーフィルムを用いないことが好ましく、制限を加えるものではない。

また、接着剤の各成分を溶剤に溶解ないし分散してワニスとしたものを、前述のキャリアフィルム上に塗布、加熱し溶剤を除去することにより接着剤層をキャリアフィルム上に形成し、この接着剤層をコア材の両面に貼合わせることによりコア材の両面に接着剤の層を形成した接着部材を作製することができる。この場合には、キャリアフィルムをカバーフィルムとして用いることもできる。

コア材の両面に形成した接着剤の層は、フィルム状接着剤のみからなる接着部材と同様、DSCを用いて測定した全硬化発熱量の10～40%の発熱を終えた状態とするのが好ましい。

本発明の接着剤硬化物の動的粘弾性測定装置で測定した貯蔵弾性率は、25℃で20～2000MPa、260℃で3～50MPaの低弾性率であると好ましい。貯蔵弾性率の測定は、接着剤硬化物に引張り荷重をかけて、周波数10Hz、昇温速度5～10℃/分で-50℃から300℃まで測定する温度依存性測定モードで行った。貯蔵弾性率が25℃で2000MPaを超えるものと260℃で50MPaを超えるものでは、半導体チップと配線基板であるインターポーザとの熱膨張係数の差によって発生する熱応力を緩和させる効果が小さくなり、剥離やクラックを発生する恐れがある。一方、貯蔵弾性率が25℃で20MPa未満では接着剤の取扱性や接着剤層の厚み精度が悪くなり、260℃で3MPa未満ではリフロークラックを発生しやすくなる。

本発明の半導体搭載用敗戦基板は、配線基板の半導体チップ搭載面に本発明の接着部材を備えたものである。

本発明の半導体搭載用配線基板に用いる配線基板としては、セラミック基板や

## 22

- 有機基板など基板材質に限定されなく用いることができる。セラミック基板としては、アルミナ基板、窒化アルミ基板などを用いることができる。有機基板としては、ガラスクロスにエポキシ樹脂を含浸させたFR-4基板、ビスマレイミドトリアジン樹脂を含浸させたBT基板、さらにはポリイミドフィルムを
- 5 基材として用いたポリイミドフィルム基板などを用いることができる。

配線の形状としては、片面配線、両面配線、多層配線いずれの構造でもよく、必要に応じて電氣的に接続された貫通孔、非貫通孔を設けてもよい。

さらに、配線が半導体装置の外部表面に現われる場合には、保護樹脂層を設けることが好ましい。

- 10 接着部材を配線基板へ張り付ける方法としては、接着部材を所定の形状に切断し、その切断された接着部材を配線基板の所望の位置に熱圧着する方法が一般的ではあるが、これに限定されるものではない。

本発明の半導体装置は、本発明の接着部材を用いて互いに接着された半導体チップと配線基板を有するものであれば、その構造に特に制限はない。

- 15 例えば、本発明の半導体装置の構造としては、更に、半導体チップの電極と配線基板とがワイヤボンディングで接続されている構造、半導体チップの電極と配線基板とがテープオートメーテッドボンディング（TAB）のインナーリードボンディングで接続されている構造等があるがこれらに限定されるものではなくいずれでも効果がある。

- 20 接着部材を用いて半導体装置を組み立てる方法を図1～図3を例に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

- 接着部材は、図1（a）に示すようにフィルム状の接着剤1である接着部材でも、図1（b）に示すようにコア材2の両面に接着剤1の層を備えた接着部材でも良く、図2（a）、図2（b）に示す配線3を形成した配線基板4の配線3側
- 25 に、所定の大きさに切り抜いた接着部材を例えば100～150℃、0.01～3MPa、0.5～10秒の条件で熱圧着し接着部材を備えた半導体搭載用配線基板を得、接着部材の配線基板4と反対側に半導体チップ5を例えば120～200℃、0.1～3MPa、1～10秒の条件で熱圧着し、150～200℃で0.5～2時間加熱して接着部材の接着剤1の層を硬化させた後、図3（a）、

## 13

図3（b）では半導体チップ5のパッドと配線基板4上の配線3とをボンディングワイヤ6で接続し、図3（c）、図3（d）では半導体チップ5のパッドに配線基板4のインナーリード6'をボンディングして、封止材7で封止、外部接続端子8であるはんだボールを設けて半導体装置を得ることができる。

- 5 上記において、半導体チップ5の貼り合わせ時よりも、接着部材を配線基板4の配線3側に貼り合わせるときのほうが、低い温度で行われることが多い。

半導体チップと配線基板の間に発生する熱応力は、半導体チップと配線基板の面積差が小さい場合に著しいが、本発明による半導体装置は低弾性率の電子部品用接着部材を用いることによりその熱応力を緩和して信頼性を確保するものである。さらに、その接着部材が難燃化されている場合、半導体装置としての難燃性を有するものである。これらの効果は、半導体チップの面積が、配線基板の面積の70%以上である場合に非常に有効に現われるものである。ここで、半導体チップの面積及び配線基板の面積とは、半導体チップ及び配線基板の互いに向かい合った面の面積を意味する。また、このように半導体チップと配線基板の面積差が小さい半導体装置においては、外部接続端子はエリア状に設けられる場合が多い。

本発明の接着部材を用いて半導体チップと配線基板を接着させた半導体装置は、耐リフロー性、温度サイクルテスト、耐湿性（耐PCT性）等に優れていた。さらに接着剤の可使用期間が長く、25℃で3ヶ月保管後のものを用いて作製した半導体装置も初期とほぼ同等の特性を示していた。

本発明において、重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより、標準ポリスチレンの検量線を用いて測定したものである。

## 実施例

- 25 以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明する。

（接着剤ワニス1の調製）

エポキシ樹脂としてビスフェノールA型エポキシ樹脂（エポキシ当量175、東都化成株式会社製商品名YD-8125を使用）45重量部、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂（エポキシ当量210、東都化成株式会社製商品名YDC



**24**

N-703を使用) 15重量部、エポキシ樹脂の硬化剤としてフェノールノボラック樹脂(大日本インキ化学工業株式会社製商品名プライオーフェンLF2882を使用) 40重量部、エポキシ基含有アクリル系重合体としてエポキシ基含有アクリルゴム(分子量100万、グリシジルメタクリレート1重量%、 $T_g$ -7

5 ℃、帝国化学産業株式会社製商品名HTR-860P-3を使用) 220重量部、潜在性硬化促進剤としてアミン-ウレイドアダクト系硬化促進剤(富士化成株式会社製商品名フジキュアFXR-1030を使用) 5重量部からなる組成物に、メチルエチルケトンを加えて攪拌混合し、真空脱気した。この接着剤ワニスを、厚さ75  $\mu$ mの離型処理したポリエチレンテレフタレートフィルム上に塗布し、

10 140℃で5分間加熱乾燥して膜厚が80  $\mu$ mの塗膜とし、接着剤フィルムを作製した。この接着剤フィルムを170℃で1時間加熱硬化させてその貯蔵弾性率を動的粘弾性測定装置(レオロジ社製、DVE-V4)を用いて測定(サンプルサイズ:長さ20mm、幅4mm、膜厚80  $\mu$ m、昇温速度5℃/分、引張りモード、10Hz、自動静荷重)した結果、25℃で600MPa、260℃で5

15 MPaであった。この接着剤ワニスの固形分は32重量%であった。この接着剤ワニスの固形分は、ワニス粘度が約100ポイズ(25℃)になるようにした値であり、これより固形分を高めて粘度を上げると厚みのばらつきが大きくなる(以下同じ)。

20 (接着剤ワニス2の調製)

接着剤ワニス1の調製において、潜在性硬化促進剤として、アミン-ウレイドアダクト系硬化促進剤の代わりにアミン-エポシアダクト系硬化促進剤(味の素株式会社製商品名アミキュアMY-24を使用) 5重量部を使用したこと以外は、接着剤ワニス1の調製に従って、接着剤ワニス2の調製を行った。

25 また、この接着剤ワニスを利用して、接着剤ワニス1の調製における方法と同様に接着剤フィルムを作製した。この接着剤フィルムを使用して前記と同様にしてその貯蔵弾性率を動的粘弾性測定装置を用いて測定した結果、25℃で360MPa、260℃で4MPaであった。この接着剤ワニス2の固形分は30重量%であった。

## 25

## (接着剤ワニス 3)

接着剤ワニス 2 の調製において、潜在性硬化促進剤として、アミン-エポキシ  
アダクト系硬化促進剤の使用量を 3 重量部としたこと以外は、接着剤ワニス 2 の  
5 調製に従って、接着剤ワニス 3 の調製を行った。

また、この接着剤ワニスを利用して、製膜時の乾燥温度を 140℃から 160℃  
に変更したこと以外は接着剤ワニス 1 の調製における方法と同様に接着剤フィ  
ルムを作製した。この接着剤フィルムを使用して前記と同様にしてその貯蔵弾性  
率を動的粘弾性測定装置を用いて測定した結果、25℃で 360 MPa、260  
10 ℃で 4 MPa であった。この接着剤ワニスの固形分は 28 重量%であった。

## (接着剤ワニス 4)

接着剤ワニス 2 の調製において、潜在性硬化促進剤として、アミン-エポキシ  
アダクト系硬化促進剤の使用量を 10 重量部としたこと以外は、接着剤ワニス 2  
15 の調製に従って、接着剤ワニス 4 の調製を行った。

また、この接着剤ワニスを利用して、製膜時の乾燥温度を 140℃から 120℃  
に変更したこと以外は接着剤ワニス 1 の調製における方法と同様に接着剤フィ  
ルムを作製した。この接着剤フィルムを使用して前記と同様にしてその貯蔵弾性  
率を動的粘弾性測定装置を用いて測定した結果、25℃で 360 MPa、260  
20 ℃で 4 MPa であった。この接着剤ワニスの固形分は 28 重量%であった。

## (接着剤ワニス 5)

接着剤ワニス 1 の調製において、潜在性硬化促進剤として、アミン-ウレイド  
アダクト系硬化促進剤の代わりに 2-フェニルイミダゾール 0.5 重量部を使用  
25 したこと以外は、接着剤ワニス 1 の調製に従って、接着剤ワニス 5 の調製を行っ  
た。

また、この接着剤ワニスを利用して、接着剤ワニス 1 の調製における方法と同  
様に接着剤フィルムを作製した。この接着剤フィルムを使用して前記と同様にし  
てその貯蔵弾性率を動的粘弾性測定装置を用いて測定した結果、25℃で 360

## 26

MPa、260℃で4MPaであった。この接着剤ワニスの固形分は28重量%であった。

## (実施例1)

- 5 接着剤ワニス1を、厚さ75 $\mu$ mの離型処理したポリエチレンテレフタレートフィルム上に塗布し、140℃で5分間加熱乾燥して、膜厚が75 $\mu$ mのBステージ状態の塗膜を形成し、キャリアフィルムを備えた接着フィルムを作製した。この接着フィルムを温度110℃、圧力0.3MPa、速度0.3m/分の条件でホットロールラミネーターを用いて貼り合わせ、厚さ150 $\mu$ mの単層フィルム状の接着部材を作製した。
- 10

なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュポン社製912型DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、全硬化発熱量の20%の発熱を終えた状態であった。また、接着剤のみの残存溶媒量は、120℃で60分間加熱前後の重量変化より1.5重量%であった。

15

## (実施例2)

接着剤ワニス1を接着剤ワニス2とした以外は実施例1と同様にして、単層フィルム状の接着部材を作製した。

- 20 なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュポン社製912型DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、全硬化発熱量の20%の発熱を終えた状態であった。残存溶媒量は、1.4重量%であった。

## (実施例3)

- 25 接着剤ワニス2を、厚さ25 $\mu$ mのポリイミドフィルム（宇部興産株式会社製商品名ユーピレックスSGA-25を使用）上に塗布し、120℃で5分間加熱乾燥して、膜厚が50 $\mu$ mのBステージ状態の塗膜を形成し、さらに接着剤層を形成した反対面に同じワニスを塗布し、140℃で5分間加熱乾燥して、膜厚が70 $\mu$ mのBステージ状態の塗膜を形成し、コア材として用いたポリイミドフィルムの両面に接着剤層を備えた接着部材を作製した。

## 27

なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュポン社製912型DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、50μm層で全硬化発熱量の25%、75μm層で全硬化発熱量の20%の発熱を終えた状態であった。残存溶媒量は、何れも1.3～1.6重量%であった。

5

## （実施例4）

接着剤ワニス2を、厚さ75μmの離型処理したポリエチレンテレフタレートフィルム上に塗布し、140℃で5分間加熱乾燥して、膜厚が75μmのBステージ状態の塗膜を形成し、キャリアフィルムを備えた接着フィルムを作製した。

- 10 この接着フィルムを、厚さ25μmのポリイミドフィルム（宇部興産株式会社製商品名ユープレックスSGA-25を使用）の両面に温度110℃、圧力0.3MPa、速度0.2m/分の条件でホットロールラミネーターを用いて貼り付け、コア材として用いたポリイミドフィルムの両面に接着剤層を備えた接着部材を作製した。

- 15 なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュポン社製912型DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、両面の接着剤層ともに全硬化発熱量の20%の発熱を終えた状態であった。残存溶媒量は、1.4重量%であった。

- 20 （実施例5）

コア材のポリイミドフィルムを厚さ25μmの液晶ポリマフィルム（株式会社クラレ製商品名ベクトラLCP-Aを使用）にしたこと以外は実施例4と同様にしてコア材として用いた液晶ポリマフィルム両面に接着剤層を備えた接着部材を作製した。

- 25 なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュポン社製912型DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、両面の接着剤層ともに全硬化発熱量の20%の発熱を終えた状態であった。残存溶媒量は、1.4重量%であった。

## (実施例6)

- コア材のポリイミドフィルムを厚さ25 $\mu$ mのテトラフルオロエチレンヘキサフルオロプロピレンコポリマーフィルム（三井・デュボンフロロケミカル株式会社製商品名テフロンFEPを使用）にしたこと以外は実施例4と同様にしてテ
- 5    トラフルオロエチレンヘキサフルオロプロピレンコポリマーフィルム両面に接着剤層を備えた接着部材を作製した。テトラフルオロエチレンヘキサフルオロプロピレンコポリマーフィルムについては、濡れ性を向上して接着性を上げるのためにその両面を化学処理（株式会社潤工社製商品名テトラエッチを使用）したものを用いた。
- 10    なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュボン社製912型DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、両面の接着剤層ともに全硬化発熱量の20%の発熱を終えた状態であった。残存溶媒量は、1.5重量%であった。

## 15    (実施例7)

- 接着剤ワニス2を、厚さ75 $\mu$ mの離型処理したポリエチレンテレフタレートフィルム上に塗布し、140℃で5分間加熱乾燥して、膜厚が60 $\mu$ mのBステージ状態の塗膜を形成し、キャリアフィルムを備えた単層フィルム状の接着部材を作製した。この単層フィルムを、厚さ100 $\mu$ mの多孔質ポリテトラフルオロ
- 20    エチレンフィルム（住友電気工業株式会社製商品名ポアフロンWP-100-100を使用）の両面に温度110℃、圧力0.3MPa、速度0.2m/分の条件でホットロールラミネーターを用いて貼り付け、コア材として用いた多孔質ポリテトラフルオロエチレンフィルムの両面に接着剤層を備えた接着部材を作製した。
- 25    なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュボン社製912型DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、両面の接着剤層ともに全硬化発熱量の20%の発熱を終えた状態であった。残存溶媒量は、1.4重量%であった。

## 29

## (実施例 8)

接着剤ワニス 1 を接着剤ワニス 3 に変更し、製膜時の乾燥温度を 140℃から 160℃に変更した以外は実施例 1 と同様にして、単層フィルム状の接着部材を作製した。

- 5      なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュポン社製 912 型 DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、全硬化発熱量の 20% の発熱を終えた状態であった。

## (実施例 9)

- 10      接着剤ワニス 1 を接着剤ワニス 4 に変更し、製膜時の乾燥温度を 140℃から 120℃に変更した以外は実施例 1 と同様にして、単層フィルム状の接着部材を作製した。

- 15      なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュポン社製 912 型 DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、全硬化発熱量の 20% の発熱を終えた状態であった。

## (参考例 1)

接着剤ワニス 1 を接着剤ワニス 5 とした以外は実施例 1 と同様にして、単層フィルム状の接着部材を作製した。

- 20      なおこの状態での接着剤の硬化度は、DSC（デュポン社製 912 型 DSC）を用いて測定（昇温速度、10℃/分）した結果、全硬化発熱量の 20% の発熱を終えた状態であった。

- 25      得られた接着部材を用いて図 3（c）、図 3（d）に示すような半導体チップと厚み 25 μm のポリイミドフィルムを基材に用いた配線基板を接着部材で貼り合せた（貼り合わせ条件：温度 160℃、圧力 1.5 MPa、時間 3 秒）半導体装置サンプル（片面にはんだボールを形成）を作製し、耐熱性、難燃性、耐湿性、発泡の有無を調べた。耐熱性の評価方法には、耐リフロークラック性と温度サイクル試験を適用した。耐リフロークラック性の評価は、サンプル表面の最高温度

- が240℃でこの温度を20秒間保持するように温度設定したIRリフロー炉にサンプルを通し、室温で放置することにより冷却する処理を2回繰り返したサンプル中のクラックを目視と超音波顕微鏡で観察した。クラックの発生していないものを○とし、発生していたものを×とした。耐温度サイクル性は、サンプルを
- 5    −55℃雰囲気（霧）に30分間放置し、その後125℃の雰囲気（霧）に30分間放置する工程を1サイクルとして、1000サイクル後において超音波顕微鏡を用いて剥離やクラック等の破壊が発生していないものを○、発生したものを×とした。また、耐湿性評価は、温度121℃、湿度100%、2気圧の雰囲気（プレッシャー）（クッカーテスト：PCT処理）で72時間処理後に剥離を観察することにより
- 10    行った。接着部材の剥離の認められなかったものを○とし、剥離のあったものを×とした。発泡の有無は超音波顕微鏡を用いて確認し、接着部材に発泡が認められなかったものを○とし、発泡のあったものを×とした。また、可使期間の評価は、得られた接着部材を25℃で3ヶ月保管したものをを用いて同様な半導体装置
- 15    サンプルを作製し、超音波顕微鏡を用いて接着剤の回路への埋め込み性を確認した。配線基板に設けられた回路との間に空隙がなかったものを○、空隙が認められたものを×とした。その結果を表1に示す。

## 31

表1 評価結果

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5
耐熱性	耐リフロックラック	○	○	○	○	○
	耐温度サイクル	○	○	○	○	○
耐湿性		○	○	○	○	○
発泡		×	○	○	○	○
可使期間		○	○	○	○	○
		実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	参考例 1
耐熱性	耐リフロックラック	○	○	○	○	○
	耐温度サイクル	○	○	○	○	○
耐湿性		○	○	○	○	○
発泡		○	○	○	○	○
可使期間		○	○	○	○	×

- 実施例1はアミン-ウレイドアダクト系潜在性硬化促進剤を用いたものであり、可使期間は長く良好であったが、硬化時の発泡が認められた。実施例2～9はア
- 5 ミン-エポキシアダクト系潜在性硬化促進剤を用いたものであり、可使期間が長く、硬化時の発泡もなく良好な結果を示した。これらの接着剤硬化物は、本発明で好ましいと規定した25℃及び260℃での貯蔵弾性率を示しており、さらにこれらの接着部材を用いた半導体装置は、耐リフロックラック性、耐温度サイクル性、耐湿性が良好であった。また、実施例3～7はコア材を備えた接着部材で
- 10 あるが、取扱性が良好であった。

参考例1は硬化促進剤にアダクトがないイミダゾール化合物を使用した例であり、可使期間が短かった。

(実施例10)

- 15 エポキシ樹脂としてビスフェノールA型エポキシ樹脂（エポキシ当量190、油化シェルエポキシ株式会社製のエピコート828を使用）45重量部、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂（エポキシ当量195、住友化学工業株式会社製のESC N195を使用）15重量部、エポキシ樹脂の硬化剤としてフェノールノボラック樹脂（大日本インキ化学工業株式会社製のプライオーフェンLF28



## 32

8 2 を使用) 4 0 重量部、シランカップリング剤として $\gamma$ -グリシドキシプロピ  
ルトリメトキシシラン (日本ユニカー株式会社製のNUCA-187を使用) 0.  
7 重量部からなる組成物に、メチルエチルケトンを加えて攪拌混合し、これにグ  
リシジルメタクリレート又はグリシジルアクリレート2~6重量%を含むエポキ  
5 シ基含有アクリル共重合体 (重量平均分子量100万、帝国化学産業株式会社製  
のHTR-860P-3を使用) 150重量部、硬化促進剤としてアミン-エポ  
キシアダクト化合物である味の素株式会社製のアミキュアMY-24を4重量部  
添加し、攪拌モータで30分混合し、ワニスを得た。ワニスの厚さ75 $\mu$ mのB  
ステージ状態の塗膜を形成し、キャリアフィルム (離型処理したポリエチレンテ  
10 レフタレートフィルム、厚み: 75 $\mu$ m) を備えた接着フィルムを作製した (乾  
燥条件: 温度140 $^{\circ}$ C、時間5分)。このBステージ状態の接着剤において、ア  
ミキュアMY-24はエポキシ樹脂及び硬化剤の混合物には均一に溶解していた  
が、アクリルゴムには溶解せず、粒子状に析出していた。また、上記接着剤は、  
完全硬化後、エポキシ樹脂が分散相、アクリルゴムが連続相に相分離していた。

15

## (実施例11)

硬化促進剤としてアミン-ウレイド系のアダクト系化合物である富士化成株式  
会社のフジキュアFXR-1030を使用した他は実施例10と同様にして、キ  
ャリアフィルムを備えた接着フィルムを作製した。Bステージ状態の接着剤にお  
20 いて、フジキュアFXR-1030はエポキシ樹脂及び硬化剤の混合物には均一  
に溶解していたが、アクリルゴムには溶解せず、粒子状に析出していた。

## (参考例2)

硬化促進剤として1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール (四国化成工  
25 業株式会社製キュアゾール2PZ-CNを使用) 0.5重量部を使用した他は実  
施例1と同様にして、キャリアフィルムを備えた接着フィルムを作製した。Bス  
テージ状態の接着剤において、キュアゾール2PZ-CNは、エポキシ樹脂、ア  
クリルゴム両方に溶解していた。

## 33

- 可使期間の評価は、得られた接着部材を25℃で1～6ヶ月保管したものを  
 いて、半導体チップと厚み25μmのポリイミドフィルムを基材に用いた配線基  
 板とを貼りあわせ（貼りあわせ条件：温度160℃、圧力1.5MPa、時間3  
 秒）超音波顕微鏡を用いて接着剤の回路への埋め込み性を確認した。配線基板に  
 5 設けられた回路との間に空隙がなかった物を○、空隙が認められたものを×とし  
 た。その結果を表2に示す。

表2 評価結果

		実施例10	実施例11	参考例2
埋め込み性	初期	○	○	○
	1ヶ月	○	○	○
	2ヶ月	○	○	×
	3ヶ月	○	○	×
	4ヶ月	○	○	×
	5ヶ月	×	×	×
	6ヶ月	×	×	×
可使期間		4ヶ月	4ヶ月	1ヶ月

- 10 実施例10はアミン-エポキシアダクト系潜在性硬化促進剤を用いたものであ  
 り、可使期間は長く良好であった。実施例11はアミン-ウレイドアダクト系潜  
 在性硬化促進剤を用いたものであり、可使期間は長く良好であった。参考例2は、  
 分子量が小さく、ゴム、エポキシの両方に溶解性のあるイミダゾール系の硬化促  
 進剤を使用したものであり、可使期間が短い。

15

## 産業上の利用可能性

- 本発明における接着剤Aは、潜在性硬化促進剤を用いることでBステージフィ  
 ルムの保存安定性を高めることができた。アミンアダクト系のMY-24及びF  
 XR-1030を用いたものは耐熱性、耐湿性が良好であった。特にアミン-エ  
 20 ポキシアダクト系潜在性硬化促進剤を使用した場合には、接着剤硬化時の硬化速  
 度が十分に大きいために発泡することなく完全な硬化物を得ることができる。  
 特にアダクト型、アミンアダクト系、アミン-エポキシアダクト系の潜在性硬化

## 34

促進剤を使用した本発明の接着剤を用いた接着部材は、耐熱性、耐湿性が良好である。これらの効果により、優れた信頼性を発現する半導体装置に必要な接着材料を効率良く提供することができる。

- 本発明の接着剤Bを用いた接着フィルムは可使期間が長いため、長期にわたり
- 5 保存でき、生産管理がしやすい点で従来の接着フィルムに比べて大きな効果が有る。よって、保存安定性に優れる接着剤、接着フィルムを作製することができる。請求項12に記載の接着剤によって、Bステージ状態で分散相がエポキシ樹脂及び硬化剤を主成分とし、連続相が重量平均分子量10万以上の高分子量成分を主成分とする場合には、さらに接着性、耐熱性とフィルムとしての取り扱い性に優
- 10 れる接着フィルムを作製することができる。特に、連続相を形成する高分子量成分の樹脂としてグリシジル（メタ）アクリレート共重成分を2～6重量%含有するエポキシ基含有アクリル共重合体を用いた接着剤は、これを用いることによって接着性、耐熱性がさらに高い接着フィルムを作製できる点で優れる。また、硬化促進剤としてアミン-エポキシアダクト化合物を用いた接着剤は、さらに
- 15 硬化時に発泡せず、かつ低弾性を有し耐熱性、耐湿性が良好な接着剤、接着フィルムを作製できる点で優れる。よって、これらの発明により、保存安定性が特に高い接着フィルム、半導体搭載用配線基板及び半導体装置を作製することができる。

## 35

## 請求の範囲

1. (1) エポキシ樹脂及びその硬化剤 100 重量部、(2) グリシジル(メ  
タ) アクリレート 0.5~6 重量%を含む Tg (ガラス転移温度) が -10℃ 以  
5 上でかつ重量平均分子量が 10 万以上であるエポキシ基含有アクリル共重合体 7  
5~300 重量部、並びに(3) 潜在性硬化促進剤 0.1~20 重量部を含有す  
る接着剤。
2. (1) エポキシ樹脂及びその硬化剤 100 重量部、(2) エポキシ樹脂と  
10 相溶性がありかつ重量平均分子量が 3 万以上の高分子量樹脂 5~40 重量部、(  
3) グリシジル(メタ) アクリレート 0.5~6 重量%を含む Tg (ガラス転移  
温度) が -10℃ 以上でかつ重量平均分子量が 10 万以上であるエポキシ基含有  
アクリル共重合体 75~300 重量部、並びに(4) 潜在性硬化促進剤 0.1~  
20 重量部を含有する接着剤。
- 15 3. 潜在性硬化促進剤がアダクト型である請求項 1 ないし請求項 2 のいずれか  
に記載の接着剤。
4. 潜在性硬化促進剤がアミンアダクトである請求項 3 に記載の接着剤。
- 20 5. 潜在性硬化促進剤がアミン-エポキシアダクトである請求項 4 に記載の接  
着剤。
6. 無機フィラーを、接着剤樹脂分 100 体積部に対して 1~20 体積部含む  
25 請求項 1 から請求項 5 のいずれかに記載の接着剤。
7. 無機フィラーがアルミナ、シリカ、水酸化アルミ、アンチモン酸化物のい  
ずれかである請求項 6 に記載の接着剤。

## 36

8. 接着剤を、DSCを用いて測定した場合の全硬化発熱量の10～40%の発熱を終えた状態にした請求項1から請求項7のいずれかに記載の接着剤。

9. 残存溶媒量が5重量%以下である請求項1から請求項8のいずれかに記載  
5 の接着剤。

10. 動的粘弾性測定装置を用いて測定した場合の接着剤硬化物の貯蔵弾性率が25℃で20～2000MPaであり、260℃で3～50MPaである請求  
10 項1から請求項9のいずれかに記載の接着剤。

11. Bステージ状態で相分離する2種類の樹脂、硬化剤、及び、硬化促進剤を必須成分とする接着剤組成物であり、Bステージ状態において硬化促進剤が分散相に相溶性を有し、連続相とは相分離することを特徴とする接着剤。

15 12. Bステージ状態で、分散相がエポキシ樹脂及び硬化剤を主成分とする相となり、連続相が重量平均分子量10万以上の高分子量成分を主成分とする相となることを特徴とする請求項11記載の接着剤。

13. 重量平均分子量10万以上の高分子量成分がグリシジルメタクリレート  
20 又はグリシジルアクリレート2～6重量%を含むエポキシ基含有アクリル共重合体であることを特徴とする請求項12記載の接着剤。

14. 硬化促進剤がアミン-エポキシアダクト化合物である請求項11～13  
いづれかに記載の接着剤。

25

15. 請求項1～請求項14のいずれかに記載の接着剤の層をキャリアフィルム上に形成して得られるフィルム状の接着部材。

16. 請求項1～請求項14のいずれかに記載の接着剤の層をコア材の両面に

形成して得られる接着部材。

17. コア材が耐熱性熱可塑フィルムである請求項16に記載の接着部材。

5 18. 耐熱性熱可塑フィルム材料の軟化点が260℃以上である請求項17に記載の接着部材。

19. コア材または耐熱性熱可塑フィルムが多孔質フィルムである請求項17又は請求項18のいずれかに記載の接着部材。

10

20. 耐熱性熱可塑フィルムが液晶ポリマである請求項17～請求項19のいずれかに記載の接着部材。

15 21. 耐熱性熱可塑フィルムがポリアミドイミド、ポリイミド、ポリエーテルイミドまたはポリエーテルスルホンのいずれかである請求項17～請求項20のいずれかに記載の接着部材。

22. 耐熱性熱可塑フィルムがポリテトラフルオロエチレン、エチレンテトラフルオロエチレンコポリマー、テトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレンコポリマー、テトラフルオロエチレンーパーフルオロアルキルビニルエーテルコポリマーのいずれかである請求項17～請求項20のいずれかに記載の接着部材。

25 23. 配線基板の半導体チップ搭載面に請求項15～請求項22のいずれかに記載の接着部材を備えた半導体搭載用配線基板。

24. 半導体チップと配線基板を請求項15～請求項22のいずれかに記載の接着部材を用いて接着させた半導体装置。

25. 半導体チップの面積が、配線基板の面積の70%以上である半導体チップと配線基板を請求項15～請求項22のいずれかに記載の接着部材を用いて接着させた半導体装置。

1/2

図 1

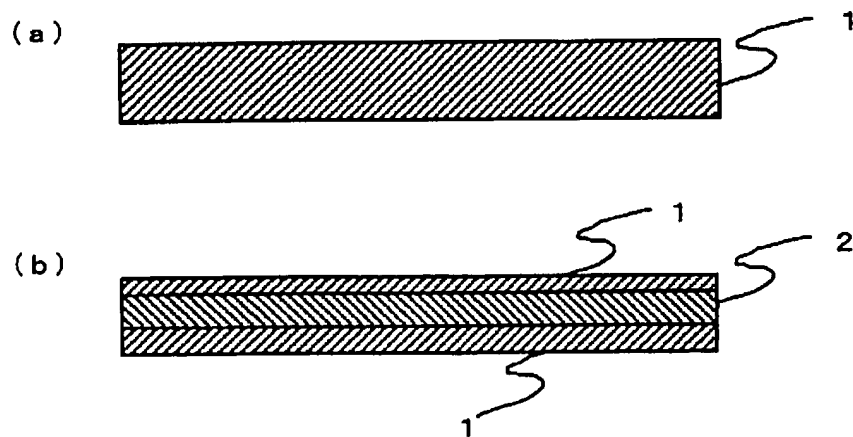
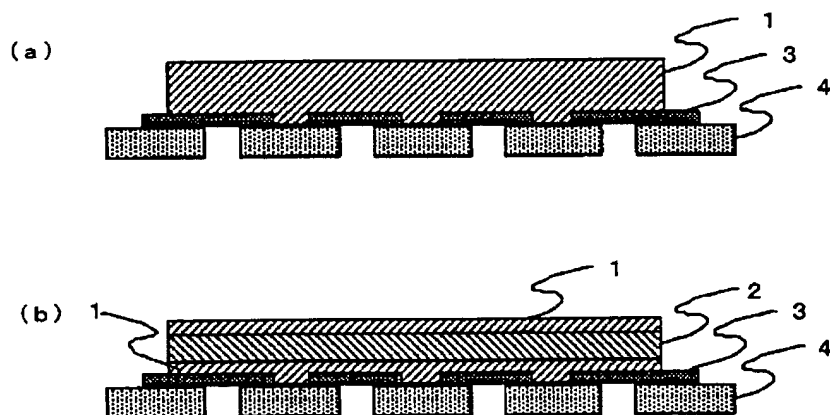


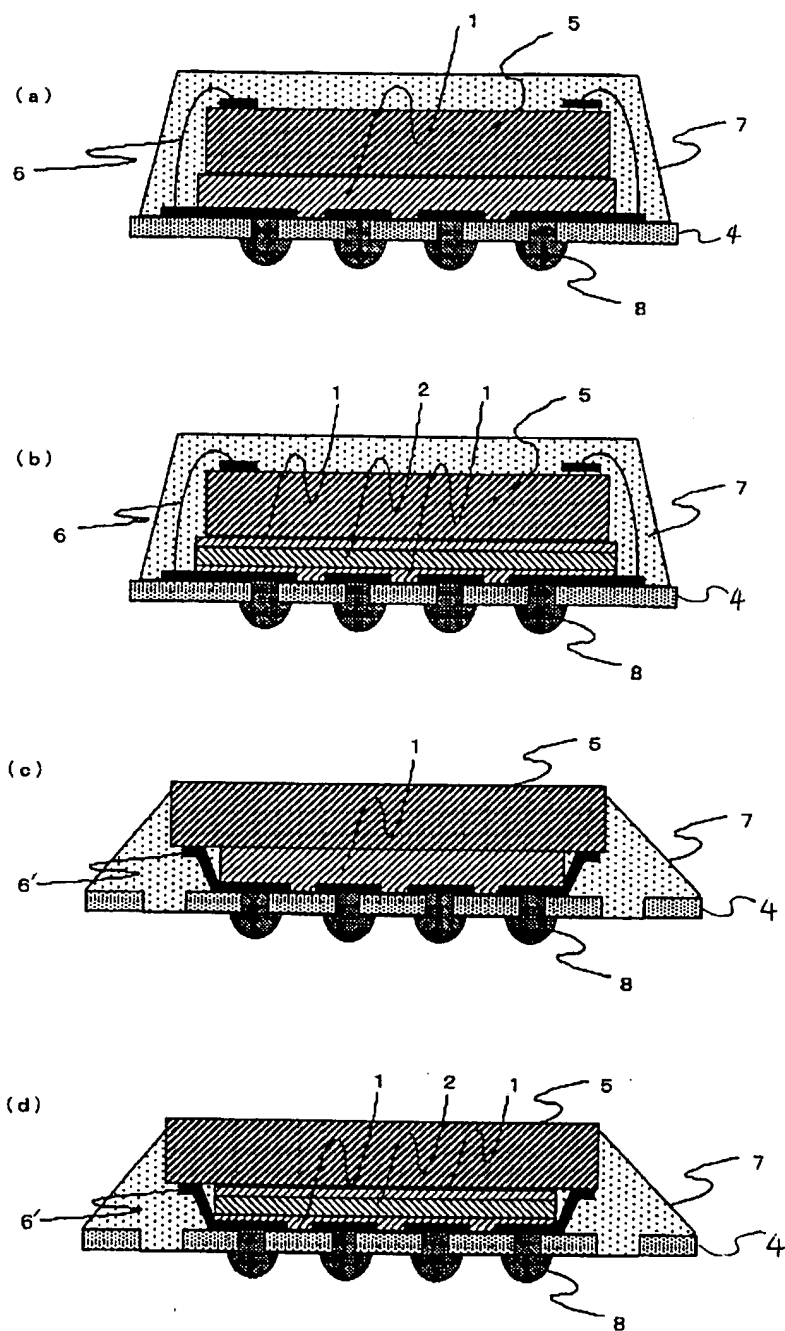
図 2





2/2

図 3



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03908

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09J163/00, C09J133/00, C09J7/02, H05K3/32, H01L23/14, H01L21/52

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09J100-C09J201/10, C08L1/00-C08L101/16, C08G59/00-C08G59/72,  
H05K1/00-H05K3/46, H01L21/00-H01L21/98

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA(STN), WPI/L (QUESTEL), REGISTRY (STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 11-106714, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 20 April, 1999 (20.04.99), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 11-017346, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 22 January, 1999 (22.01.99), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 11-012545, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 19 January, 1999 (19.01.99), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 10-341083, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 22 December, 1998 (22.12.98), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 10-338839, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 22 December, 1998 (22.12.98), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 10-287848, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 27 October, 1998 (27.10.98)	1-25



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
12 September, 2000 (12.09.00)Date of mailing of the international search report  
03 October, 2000 (03.10.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03908

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	Claims; Par. No.[0007], implementation example (Family: none)	
X	JP, 10-226770, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 25 August, 1998 (25.08.98), Claims; Par. No.[0008], implementation example (Family: none)	1-25
X	JP, 10-226769, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 25 August, 1998 (25.08.98), Claims; Par. No.[0009], implementation example (Family: none)	1-25
X	JP, 10-163391, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 19 June, 1998 (19.06.98), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 7-173449, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 20 March, 1995 (20.03.95) Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 7-076679, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 20 March, 1995 (20.03.95), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 6-256746, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 13 September, 1994 (13.09.94), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 4-314391, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 05 November, 1992 (05.11.92), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 3-255185, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 14 November, 1991 (1991), Claims (Family: none)	1-25
P,X	JP, 2000-159860, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 13 June, 2000 (13.06.00) Claims (Family: none)	1-25
P,X	JP, 2000-144077, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 26 May, 2000 (26.05.00), Claims (Family: none)	1-25
P,X	JP, 11-284114, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 15 October, 1999 (15.10.99), Claims (Family: none)	1-25
P,X	JP, 11-265960, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 28 September, 1999 (28.09.99), Claims (Family: none)	1-25
P,X	JP, 11-246829, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 14 September, (14.09.99), Claims (Family: none)	1-25
P,X	JP, 11-209724, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 03 August, 1999 (03.08.99), Claims (Family: none)	1-25

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03908

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	JP, 11-209723, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 03 August, 1999 (03.08.99), Claims (Family: none)	1-25
P,X	JP, 11-166019, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 22 June, 1999 (22.06.99), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 10-245533, A (Seikisui Chem. Co., Ltd.), 14 September, 1998 (14.09.98),	1-3,6-13,15-22
Y	Claims; Par. No.[0009], implementation example, (Family: none)	4,5,14
X	JP, 7-292339, A (Nippon Carbide Co., Inc.), 07 November, 1995 (07.11.95), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 5-156229, A (Nippon Carbide Co., Inc.), 22 June, 1993 (22.06.93),	1-3,6-13,15-22
Y	Claims (Family: none)	4,5,14
X	JP, 1-113477, A (Sunstar Giken K.K.), 02 May, 1989 (02.05.89), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 63-081187, A (Ibiden Co., Ltd.), 12 April, 1988 (12.04.88), Claims (Family: none)	1-25
X	JP, 62-297377, A (Nissan Motor Co., Ltd.), 24 December, 1987 (24.12.87),	1-3,6-13,15-22
Y	Claims & DE, 3720443, A	4,5,14
X	EP, 914027, A1 (Hitachi Chemical Company, Ltd.) 06 May, 1999 (06.05.99), Claims & WO, 98/03047, A1	1-25
X	EP, 359373, A1 (FSK K.K.), 21 March, 1990 (21.03.90),	1-3,6-13,15-22
Y	Claims & JP, 2-032181, A & US, 5110388, A	4,5,14
Y	JP, 10-273629, A (Hitachi Chem. Co., Ltd.), 13 October, 1998 (13.10.98), Claims (Family: none)	4,5,14
Y	JP, 5-156226, A (Ube Ind. Ltd.), 22 June, 1993 (22.06.93), Claims (Family: none)	4,5,14
Y	JP, 63-072722, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 02 April, 1988 (02.04.88), Claims (Family: none)	4,5,14
Y	EP, 459614, A2 (Somar Corporation), 04 December, 1991 (04.12.91), Claims & JP, 4-033916, A	4,5,14

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03908

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The "special technical feature" of claim 1 pertains to an adhesive comprising specific components, and the "special technical feature" of claims 11 and 12 pertains to an adhesive not containing the specific components described in claim 1. There is no technical relationship among those inventions which involves one or more identical or corresponding special technical features. Therefore, they are not considered to be so linked as to form a single general inventive concept.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
  
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
  
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl<sup>7</sup> C09J163/00, C09J133/00, C09J7/02, H05K3/32, H01L23/14, H01L21/52

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl<sup>7</sup> C09J1/00-C09J201/10, C08L1/00-C08L101/16, C08G59/00-C08G59/72, H05K1/00-H05K3/46, H01L21/00-H01L21/98

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926年-2000年  
 日本国公開実用新案公報 1971年-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994年-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1996年-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN), WPI/L (QUESTEL), REGISTRY (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 11-106714, A (日立化成工業株式会社), 20. 4月, 1999 (20. 04. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 11-017346, A (日立化成工業株式会社), 22. 1月, 1999 (22. 01. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 11-012545, A (日立化成工業株式会社), 19. 1月, 1999 (19. 01. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12. 09. 00

国際調査報告の発送日

03.10.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

安藤 達也 印

4V

9285

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-341083, A (日立化成工業株式会社), 22. 12月. 1998 (22. 12. 98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 10-338839, A (日立化成工業株式会社), 22. 12月. 1998 (22. 12. 98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 10-287848, A (日立化成工業株式会社), 27. 10月. 1998 (27. 10. 98), 特許請求の範囲、段落0007、実施例 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 10-226770, A (日立化成工業株式会社), 25. 8月. 1998 (25. 08. 98), 特許請求の範囲、段落0008、実施例 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 10-226769, A (日立化成工業株式会社), 25. 8月. 1998 (25. 08. 98), 特許請求の範囲、段落0009、実施例 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 10-163391, A (日立化成工業株式会社), 19. 6月. 1998 (19. 06. 98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 7-173449, A (日立化成工業株式会社), 20. 3月. 1995 (20. 03. 95), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 7-076679, A (日立化成工業株式会社), 20. 3月. 1995 (20. 03. 95), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 6-256746, A (日立化成工業株式会社), 13. 9月. 1994 (13. 09. 94), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 4-314391, A (日立化成工業株式会社), 5. 11月. 1992 (05. 11. 92), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 3-255185, A (日立化成工業株式会社), 14. 11月. 1991 (14. 11. 91), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
P, X	JP, 2000-159860, A (日立化成工業株式会社), 13. 6月. 2000 (13. 06. 00), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
P, X	JP, 2000-144077, A (日立化成工業株式会社), 26. 5月. 2000 (26. 05. 00), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
P, X	JP, 11-284114, A (日立化成工業株式会社), 15. 10月. 1999 (15. 10. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P, X	JP, 11-265960, A (日立化成工業株式会社), 28. 9月. 1999 (28. 09. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
P, X	JP, 11-246829, A (日立化成工業株式会社), 14. 9月. 1999 (14. 09. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
P, X	JP, 11-209724, A (日立化成工業株式会社), 3. 8月. 1999 (03. 08. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
P, X	JP, 11-209723, A (日立化成工業株式会社), 3. 8月. 1999 (03. 08. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
P, X	JP, 11-166019, A (日立化成工業株式会社), 22. 6月. 1999 (22. 06. 99), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 10-245533, A (積水化学工業株式会社), 14. 9月. 1998 (14. 09. 98), 特許請求の範囲、段落0009、実施例 (ファミリーなし)	1-3,6,-13, 15-22 4,5,14
Y		
X	JP, 7-292339, A (日本カーバイド工業株式会社), 7. 11月. 1995 (07. 11. 95), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 5-156229, A (日本カーバイド工業株式会社), 22. 6月. 1993 (22. 06. 93), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-3,6,-13, 15-22 4,5,14
Y		
X	JP, 1-113477, A (サンスター技研株式会社), 2. 5月. 1989 (02. 05. 89), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 63-081187, A (イビデン株式会社), 12. 4月. 1988 (12. 04. 88), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-25
X	JP, 62-297377, A (日産自動車株式会社), 24. 12月. 1987 (24. 12. 87), 特許請求の範囲 &DE, 3720443, A	1-3,6,-13, 15-22 4,5,14
Y		
X	EP, 914027, A1 (HITACHI CHEMICAL COMPANY,LTD.), 6. May. 1999 (06. 05. 99), CLAIMS &WO, 98/03047, A1	1-25
X	EP, 359373, A1 (FSK KABUSHIKI KAISYA), 21. Mar. 1990 (21. 03. 90), CLAIMS &JP, 2-032181, A &US, 5110388, A	1-3,6,-13, 15-22 4,5,14
Y		



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 10-273629, A (日立化成工業株式会社), 13. 10月. 1998 (13. 10. 98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	4,5,14
Y	JP, 5-156226, A (宇部興産株式会社), 22. 6月. 1993 (22. 06. 93), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	4,5,14
Y	JP, 63-072722, A (松下電器産業株式会社), 2. 4月. 1988 (02. 04. 88), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	4,5,14
Y	EP, 459614, A2 (SOMAR CORPORATION), 4. Dec. 1991 (04. 12. 91), CLAIMS &JP, 4-033916, A	4,5,14

## 第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1の「特別な技術的特徴」は特定の構成成分を含む接着剤に関し、請求の範囲11-12の「特別な技術的特徴」は請求の範囲1に記載された特定の構成成分を含まない接着剤に関するものである。これらの発明は、一又は二以上の同一又は対応する特別な技術的特徴を含む技術的な関係にないから、単一の一般的発明概念を形成するように連関しているものとは認められない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。